

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
26. Juni 2003 (26.06.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 03/051510 A3

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: B01J 29/90,  
29/40, 38/12, 38/02, 8/02

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/13495

(22) Internationales Anmeldedatum:  
29. November 2002 (29.11.2002)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
101 61 665.1 14. Dezember 2001 (14.12.2001) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): LURGI AG (DE/DE); Lurgiallee 5, 60295 Frankfurt  
am Main (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BACH, Hermann  
(DE/DE); Lahnstr. 28, 56412 Heiligenroth (DE). KÖM-  
PEL, Harald (DE/DE); Nachtigallenstrasse 44, 63263

Neu-Isenburg (DE). TRABOLD, Peter (DE/DE); Karls-  
bader Strasse 27, 64295 Darmstadt (DE). KÖNIG, Peter  
(DE/DE); Bommerheimer Weg 86, 61348 Bad Hom-  
burg (DE). BOLL, Walter (DE/DE); Nordring 19, 60388  
Frankfurt am Main (DE). BUCHOLD, Henning (DE/DE);  
Erzbergerstrasse 3, 63452 Hanau (DE). HÖPER, Frank  
(DE/DE); Gutenbergstrasse 5, 61184 Karben (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: LURGI AG; Lurgiallee 5,  
60295 Frankfurt am Main (DE).

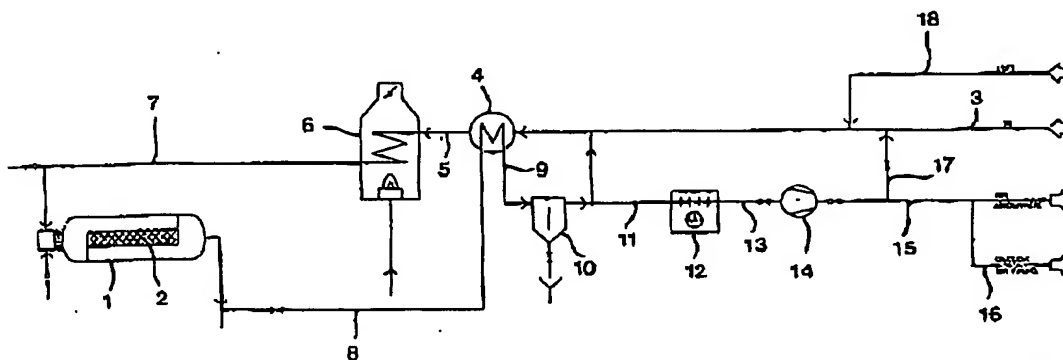
(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,  
CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,  
GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR,  
KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK,  
MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU,  
SC, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,  
UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,  
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),  
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,  
TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD FOR THERMALLY DECOCKING A ZEOLITE CATALYST

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR THERMISCHEN ENTKOKUNG EINES ZEOLITH-KATALYSATORS



(57) Abstract: The granular, shape-selective zeolite catalyst used as a bulk material in a reactor for producing lower olefins on the basis of a mixture of higher olefins has to be decoked from time to time. For this purpose, the reactor is scavenged with a nitrogen flux heated up to 460 to 500 °C for removing carbohydrates. The reactor is then cooled by a nitrogen flux heated up to 420 to < 460 °C, scavenged with a nitrogen/air mixture heated up to 460 °C to 500 °C until completely decoked and then scavenged with a nitrogen flux heated up to 460 to 500 °C.

(57) Zusammenfassung: Der bei einem Verfahren zur Herstellung niedriger Olefine aus einem Einsatzgemisch höherer Olefine als Schlüftung in einen Reaktor eingesetzte körnige, formselektive Zeolith-Katalysator muss von Zeit zu Zeit entkoked werden. Dies geschieht in der Weise, dass der Reaktor mit einem auf 460 bis 500 °C aufgeheizten Stickstoffstrom zum Austreiben der Kohlenwasserstoffe gespült, dann der Reaktor mit einem auf 420 bis < 460 °C aufgeheizten Stickstoffstrom gekühlt, dann der Reaktor von einem auf 460 °C bis 500 °C aufgeheizten Stickstoff / Luft-Gemisch bis zur vollständigen Entkoking durchströmt und anschliessend der Reaktor mit einem auf 460 bis 500 °C aufgeheizten Stickstoffstrom gespült wird.

WO 03/051510 A3



DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

- hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii) für die folgenden Bestimmungsstaaten AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW, ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY,

- Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv) nur für US

**Veröffentlicht:**

- mit internationalem Recherchenbericht

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen  
Recherchenberichts: 18. Dezember 2003

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

## Verfahren zur thermischen Entkokung eines Zeolith-Katalysators

### Beschreibung:

Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur thermischen Entkokung eines zur Herstellung niederer Olefine, vorzugsweise  $C_2$  und  $C_3$  Olefine, aus einem Gemisch höherer Olefine, vorzugsweise  $C_4$  bis  $C_8$  Olefine oder aus Methanol oder aus Dimethylether in einem Reaktor mit einer Schüttung aus körnigem, formselektivem Zeolith-Katalysator auf der Basis von kristallinen Alumosilikaten vom Pentasil-Typ.

Die EP-B-0448000 beschreibt ein Verfahren zur Erzeugung von niederen Olefinen aus Methanol durch Umsetzung eines Methanol- und/oder Dimethyletherdampf und Wasserdampf enthaltenen Reaktionsgemisches in einem Röhrenreaktor an einem indirekt gekühlten Katalysator auf der Basis von kristallinen Alumosilikaten vom Pentasil-Typ mit einem Si/Al-Atomverhältnis von mindestens 10. Ein ähnliches Verfahren ist auch durch die DE-A-19723363 offenbart.

Aus der DE-A-19648795 ist ein Verfahren zum Erzeugen von  $C_3$  und  $C_4$  Olefinen aus einem  $C_4$  bis  $C_7$  Olefine enthaltendem Einsatzgemisch durch Umsetzen dieses Gemisches bei Temperaturen von 380 bis 700 °C an einem körnigen, formselektiven als Schüttung in einem Behälter untergebrachten Zeolith-Katalysator vom Pentasil-Typ bekannt, wobei ein Atomverhältnis Si : Al im Bereich von 10 : 1 bis 200 : 1 vorliegt. Von einem solchen Zeolith-Katalysator wird auch bei dem in der DE-A-10000889 beschriebenen Verfahren zum Erzeugen von  $C_2$  und  $C_3$  Olefinen aus Einsatzkohlenwasserstoffen Gebrauch gemacht.

Da es bei der Umwandlung höherer Olefine zu niederen Olefinen zu Koksablagerungen auf den Partikeln des Zeolith-Katalysators kommt, ist es erforderlich, dass der Zeolith-Katalysator nach etwa 1000 Betriebsstunden entkocht wird. Zu diesem Zweck ist es bekannt, dem Reaktor auf eine Temperatur von ca. 500 °C aufgeheizten Wasserdampf zuzuführen. Durch Öffnen eines entsprechenden Ventils wird dem Reaktor so viel Luft zugeführt bis ein Luft/Dampfverhältnis von zunächst ca. 0,1 (Gewichtsverhältnis) erreicht wird. Das Abbrennen des Kokes beginnt spontan und schreitet durch die verkokten Sektionen weiterhin vor. Etwaige heiße Stellen sind genauestens zu überwachen, und, wenn nötig die Luftmenge zu reduzieren, bevor die Reaktortemperatur den maximal zulässigen Wert überschreitet. Wenn keine heißen Stellen erkennbar sind bzw. sich der Entkokungsvorgang stabilisiert hat, wird durch Vergrößerung der Luftmenge das Luft/Dampf-Verhältnis auf 0,3 angehoben. Während des Entkokungsvorgangs wird die Temperatur im Reaktor bei 500 °C gehalten. Bei dem Entkokungsvorgang wird die zugeführte Luftmenge in mehreren Schritten angehoben, wobei die Dampfmenge wie auch die Austrittstemperatur aus dem Ofen konstant gehalten werden. Bei der angegebenen Temperatur von 500 °C am Austritt des Reaktors lässt sich eine Beendigung der Entkokung des Katalysators dadurch erkennen, dass keine Erhöhung der Temperatur am Reaktoraustritt mehr erfolgt.

Der Nachteil dieses Entkokungsverfahrens besteht darin, dass durch den Wasserdampf die Aluminium-Komponente aus dem Zeolith-Katalysator entfernt und infolge der dadurch eingetretenen Änderung der Porenstruktur die Wirkung des Zeolith-Katalysators beeinträchtigt wird bzw. im Extremfall keinerlei Wirkung mehr feststellbar ist.

Es ist die Aufgabe der vorliegenden Erfindung, das eingangs beschriebene Verfahren so auszubilden, dass die katalytische Wirkung des Zeolith-Katalysators auch nach der Entkokung im vollen Umfang erhalten bleibt.

Diese Aufgabe ist dadurch gelöst, dass in einer Vorstufe der Reaktor mit einem auf eine Eintrittstemperatur von 460 bis 500 °C aufgeheizten Stickstoffstrom zum Austreiben von Kohlenwasserstoffen aus dem Zeolith-Katalysator gespült, der mit Kohlenwasserstoffen beladene Stickstoffstrom aus dem Reaktor ausgeleitet und der

Reaktor mittels eines auf eine Eintrittstemperatur von 420 bis < 460 °C aufgeheizten Stickstoffstroms entsprechend gekühlt wird. In einer Hauptstufe wird dann der Reaktor von einem langsam auf eine Eintrittstemperatur von 460 bis 500 °C aufgeheizten Stickstoff/Luft-Gemisch bis zur vollständigen Entkokung des Zeolith-Katalysators durchströmt. In einer Nachstufe wird der Reaktor dann mit einem auf eine Eintrittstemperatur von 460 bis 500 °C aufgeheizten Stickstoffstrom zum Ausspülen von im Katalysator vorhandener Luft gespült.

Im Rahmen der vorzugsweisen Ausbildung des erfindungsgemäßen Verfahrens kann das Stickstoff/Luft-Gemisch noch bis zu 75 Vol.-%, vorzugsweise 40 bis 60 Vol.-% Wasserdampf enthalten.

Entsprechend dem Ausmaß der Koksbildung wird in der Vorstufe der Katalysator 8 bis 16 h lang mit Stickstoff gespült und dann 1 bis 8 h lang mit Stickstoff gekühlt. Danach wird in der Hauptstufe der Reaktor von einem in mehreren Verfahrensschritten von jeweils 5 bis 20 °C in jeweils 0,5 bis 1,0 h aufgeheizten Stickstoff/Luft-Gemisch durchströmt und die Eintrittstemperatur des Stickstoff/Luft-Gemisches pro Verfahrensschritt 6 bis 16 h, vorzugsweise 8 bis 12 h, falls erforderlich bis zu 24 h, konstant gehalten.

Der Anteil der Luft an dem Stickstoff/Luft-Gemisch beträgt 2 bis 10 Vol.-% und wird mit fortschreitender Entkokung bis auf 50 Vol.-%, wenigstens im letzten Verfahrensschritt, erhöht.

Der aus dem Reaktor austretende mit Kohlenwasserstoffen beladene Spül-Stickstoffstrom wird einer thermischen Behandlung zugeführt, während der aus dem Reaktor ausgeleitete zur Kühlung dienende Stickstoffstrom entweder an die Atmosphäre abgeführt oder in den Verfahrenskreislauf zurückgeführt wird. Die größere Menge des aus dem Reaktor austretenden Stickstoff/Luft-Gemisches wird in den Reaktor zurückgeführt und nur die kleinere Menge an die Atmosphäre abgegeben.

Die Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens besteht aus einem der Aufheizung der Stickstoffströme bzw. des Stickstoff/Luft-Stroms dienenden Erhitzer, einem

anschließenden Reaktor, einem anschließenden Staubabscheider, einem anschließenden Luftkühler und einem anschließenden Verdichter.

Eine besondere Ausgestaltung der Vorrichtung ist darin zu sehen, dass dem Erhitzer ein Wärmetauscher vorgeschaltet ist, durch den das aus dem Reaktor austretende mit Staub beladene Stickstoff/Luft-Gemisch vor dem Eintritt in den Staubabscheider strömt.

Die Erfindung ist nachstehend durch das in Fig. 1 wiedergegebenen Verfahrensfliessbild und ein Ausführungsbeispiel näher erläutert.

Bei der Herstellung von Ethylen bzw. Propylen in Ethylen-Anlagen fallen  $C_4$  bzw.  $C_5$  Olefine in größeren Mengen als Nebenprodukte an. Diese Olefine lassen sich durch eine adiabate Reaktionsführung in der Gasphase an einem in dem liegenden Reaktor (1) als Schüttung eingebrachten Zeolith-Katalysator (2) auf der Basis von kristallinen Alumosilikaten vom Pentasil-Typ zu  $C_2$  und  $C_3$  Olefinen umwandeln. Erfahrungsgemäß muss ein solcher Katalysator nach etwa 1000 Betriebsstunden regeneriert, d.h. entkocht werden, da die Katalysatorpartikel mit Koks belegt sind. Dazu wird der Reaktor (1) mit den entsprechenden Armaturen von den anderen in Betrieb befindlichen Reaktoren abgetrennt. Gemäß dem Entkokungsprogramm werden  $15.600 \text{ m}^3 / \text{h}$  Stickstoff über Leitung (3) dem Wärmetauscher (4) und Leitung (5) dem Erhitzer (6) aufgegeben und in diesen auf eine Temperatur von  $480^\circ \text{C}$  aufgeheizt. Der über Leitung (7) den Erhitzer (6) verlassende Stickstoffstrom wird dem Reaktor (1) zugeführt. Der mit Kohlenwasserstoffen beladene Stickstoffstrom wird aus dem Reaktor (1) ausgeleitet und über Leitung (8) dem Wärmetauscher (4) zugeführt. Der über Leitung (9) den Wärmeaustauscher (4) verlassende Stickstoffstrom wird über den Staubabscheider (10), danach über Leitung (11) dem Luftkühler (12) und dann über Leitung (13) dem Abgasgebläse (14) zugeführt. Über Leitung (15) wird der aus dem Gasgebläse austretende Stickstoffstrom über Leitung (16) zur Fackel geleitet. Die Spülung des Zeolith-Katalysators dauert 12 h.

Anschließend wird der Reaktor (1) mit einer entsprechenden in dem Erhitzer (6) auf eine Eintrittstemperatur von  $440^\circ \text{C}$  aufgeheizte Stickstoffmenge 4 h lang gekühlt. Der den Reaktor (1) verlassende Stickstoffstrom wird in den Anlagenkreislauf über Leitung (17) zurückgeführt. Zur eigentlichen Entkokung werden dem Stickstoff über Leitung

(18) 5 Vol.-% Luft zugemischt und die Eintrittstemperatur des Stickstoff/Luft-Gemisches wird in Verfahrensschritten von 10° bis zum Erreichen der Eintrittstemperatur von 480 °C angehoben, wobei die Eintrittstemperatur bei jedem Verfahrensschritt 12 h lang konstant gehalten wird. Nach Erreichen der Eintrittstemperatur von 480 °C wird der Anteil der Luft des Stickstoff/Luft-Gemisches zunächst auf 25 % und danach auf 50% für die Dauer von jeweils 12 h erhöht. Die Entkokung ist abgeschlossen, wenn der Temperaturanstieg über der Katalysatorschüttung gegen 0 läuft bzw. wenn weniger bzw. kein Sauerstoff im Reaktor mehr verbraucht wird. Im letzten Verfahrensschritt wird die Luftzufuhr abgestellt und der Reaktor (1) 12 h lang mit Stickstoff gespült, um den Sauerstoff aus dem Zeolith-Katalysator bzw. aus dem Reaktor zu entfernen.

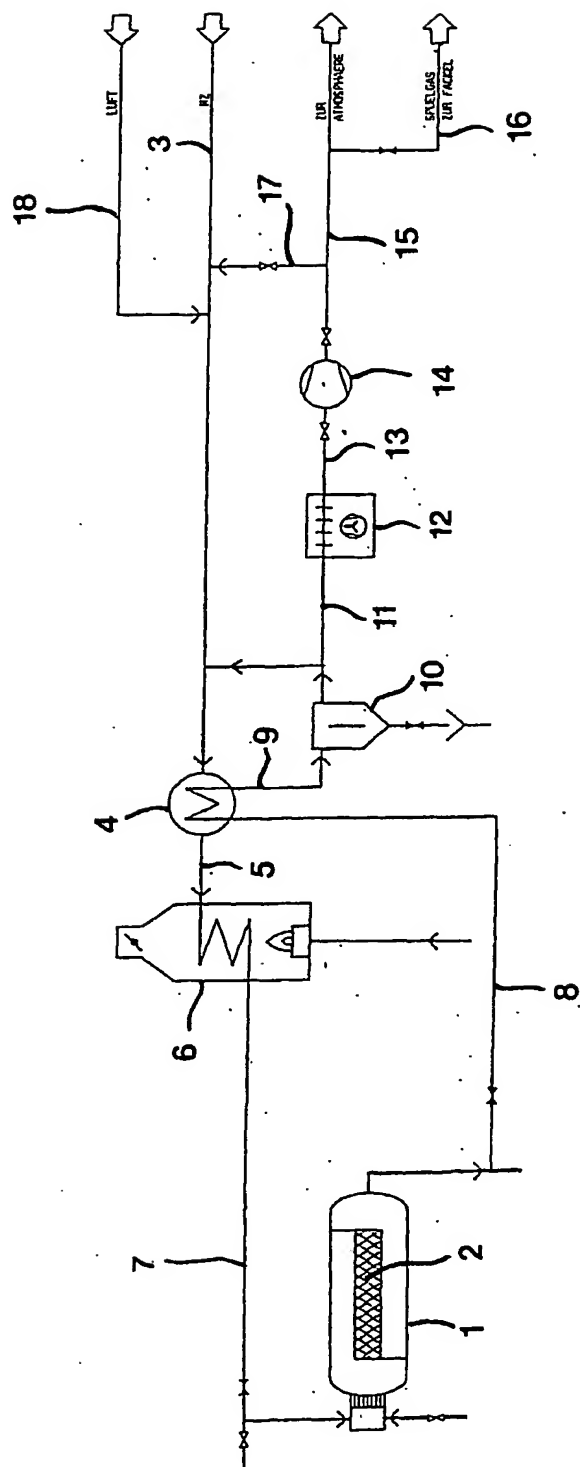
Der mit der Erfindung erzielte Vorteil ist insbesondere darin zu sehen, dass die Wirkung des Zeolith-Katalysators durch die Verwendung eines Stickstoff/Luft-Gemisches zum Zwecke der Entkokung des Zeolith-Katalysators vollständig erhalten bleibt.

Patentansprüche

1. Verfahren zur thermischen Entkokung eines zur Herstellung niederer Olefine, vorzugsweise  $C_2$  und  $C_3$  Olefine aus einem Gemisch höherer Olefine, vorzugsweise  $C_4$  bis  $C_8$  Olefine oder aus Methanol oder aus Dimethylether in einem Reaktor (1) mit einer Schüttung aus körnigem, formselektivem Zeolith-Katalysator (2) auf der Basis von kristallinen Aluminosilikaten vom Pentasil-Typ, dadurch gekennzeichnet, dass in einer Vorstufe der Reaktor (1) mit einem auf eine Eintrittstemperatur von 460 bis 500 °C aufgeheizten Stickstoffstrom zum Austreiben der Kohlenwasserstoffe aus dem Zeolith-Katalysator gespült, der mit Kohlenwasserstoffen beladene Stickstoffstrom aus dem Reaktor ausgeleitet und der Reaktor mittels eines auf eine Eintrittstemperatur von 420 bis < 460 °C aufgeheizten Stickstoffstroms entsprechend abgekühlt wird, dass in einer Hauptstufe der Reaktor von einem langsam auf eine Eintrittstemperatur von 460 bis 500 °C aufgeheizten Stickstoff/Luft-Gemisch bis zur vollständigen Entkokung des Zeolith-Katalysators durchströmt wird und dass in einer Nachstufe der Reaktor mit einem auf eine Eintrittstemperatur von 460 bis 500 °C aufgeheiztem Stickstoffstrom zum Ausspülen von Luft aus dem Zeolith-Katalysator gespült wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1 dadurch gekennzeichnet, dass das Stickstoff/Luft-Gemisch bis zu 75 Vol.-%, vorzugsweise 40 bis 60 Vol.-% Wasserdampf enthält.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 2 dadurch gekennzeichnet, dass in der Vorstufe der Reaktor (1) 8 bis 16 h lang mit Stickstoff gespült wird.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3 dadurch gekennzeichnet, dass in der Vorstufe der Reaktor (1) 1 bis 8 h lang mit Stickstoff gekühlt wird.
5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4 dadurch gekennzeichnet, dass in der Hauptstufe der Reaktor (1) von einem in mehrere Verfahrensschritten von jeweils 5 bis 20 °C in 0,5 bis 1,0 h aufgeheizten Stickstoff/Luft-Gemisch durchströmt und die Eingangstemperatur pro Verfahrensschritt 8 bis 16 h, vorzugsweise 8 bis 12 h, gegebenenfalls bis zu 24 h konstant gehalten wird.



6. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5 dadurch gekennzeichnet, dass der 2 bis 10 Vol.-% betragende Anteil der Luft an dem Stickstoff/Luft-Gemisch mit fortschreitender Entkokung bis auf 50 Vol.-%, wenigstens im letzten Verfahrensschritt, angehoben wird.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6 dadurch gekennzeichnet, dass der aus dem Reaktor (1) ausgeleitete mit Kohlenwasserstoffen beladene Stickstoffstrom einer thermischen Behandlung zugeführt wird.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7 dadurch gekennzeichnet, dass der aus dem Reaktor (1) ausgeleitete für die Kühlung eingesetzte Stickstoffstrom an die Atmosphäre abgeführt oder in den Kreislauf zurückgeführt wird.
9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8 dadurch gekennzeichnet, dass die größere Menge des aus dem Reaktor (1) ausgeleiteten Stickstoff/Luft-Gemisches in den Reaktor zurückgeführt und die kleinere Menge an die Atmosphäre abgeführt wird.
10. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 9 gekennzeichnet durch einen der Aufheizung des Stickstoffströme und des Stickstoff-/Luft-Stroms dienenden Erhitzer (6), einen anschließenden Reaktor (1), einen anschließenden Staubabscheider (10), einen anschließenden Luftkühler (12) und einen anschließenden Verdichter (14).
11. Vorrichtung nach Anspruch 10, gekennzeichnet durch einen dem Erhitzer (1) vorgeschalteten Wärmetauscher (4).



**FIG. 1**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No.

PCT/EP 13495

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B01J29/90 B01J29/40 B01J38/12 B01J38/02 B01J08/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 359 843 A (UNION CARBIDE CORP) 28 March 1990 (1990-03-28) page 3, line 23-32; claims 1,2,15-18,22,37,43,47-52; examples 2-26 page 16, line 13 page 19, line 16-39,51-58 ---	1-9
Y	US 5 648 585 A (MURRAY BRENDAN DERMOT ET AL) 15 July 1997 (1997-07-15) claim 1 column 9, line 58 -column 10, line 63 column 14, line 19-36 column 15, line 6-37 --- -/-	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document relating to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "A" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

25 March 2003

Date of mailing of the international search report

12.3.06.03

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.O. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3018

Authorized officer

Jourdan, A

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In International Application No.

PCT/EP 92/13495

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 98 55228 A (GROSCH GEORG HEINRICH ; BASF AG (DE); WALCH ANDREAS (DE); HARDER WO) 10 December 1998 (1998-12-10) page 19, line 29 -page 22, line 24; examples 4,6 ---	1-9
A	EP 0 071 137 A (BAYER AG) 9 February 1983 (1983-02-09) claims 1,4-6; examples 1,2 page 2, line 30 -page 3, line 3 page 10, line 5-25 page 14, line 1-19 page 16, line 8-12 ---	1-9
A	EP 0 909 804 A (RES INST PETROLEUM PROCESSING ; CHINA PETROCHEMICAL CORP (CN)) 21 April 1999 (1999-04-21) page 3, line 7-12; claim 1 ---	1-9
A	US 4 610 972 A (HUGHES THOMAS R) 9 September 1986 (1986-09-09) column 13, line 27 -column 14, line 24; figure 1 claims 1,2,11 -----	1-11

The International Searching Authority has determined that this international application contains multiple (groups of) inventions, namely

1. Claims: 1-9

Method for regenerating a zeolite catalyst.

2. Claims: 10-11

Device for carrying out a regeneration method.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Informative patent family members

Int. Classification No.

PCT/EP 02/13495

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0359843	A	28-03-1990	CA 1315300 A1	30-03-1993
			DK 527688 A	23-03-1990
			JP 2022877 C	26-02-1996
			JP 2102726 A	16-04-1990
			JP 7045015 B	17-05-1995
			NO 884172 A ,B,	21-03-1990
			ZA 8807238 A	25-10-1989
			EP 0359843 A1	28-03-1990
			AU 609186 B2	26-04-1991
			AU 2239488 A	29-03-1990
			CN 1041932 A ,B	09-05-1990
			DE 3876624 D1	21-01-1993
			DE 3876624 T2	09-06-1993
			US 4973792 A	27-11-1990
US 5648585	A	15-07-1997	AT 182870 T	15-08-1999
			AU 697265 B2	01-10-1998
			AU 1407095 A	17-07-1995
			BR 9408464 A	26-08-1997
			CA 2180276 A1	06-07-1995
			CN 1143356 A ,B	19-02-1997
			CN 1236671 A	01-12-1999
			DE 69419941 D1	09-09-1999
			DE 69419941 T2	20-04-2000
			EP 0737176 A1	16-10-1996
			ES 2137489 T3	16-12-1999
			FI 962683 A	28-08-1996
			JP 9509406 T	22-09-1997
			NO 962770 A	28-06-1996
			NO 20024215 A	28-06-1996
			RU 2140410 C1	27-10-1999
			SG 52393 A1	28-09-1998
			WO 9518084 A1	06-07-1995
			ZA 9410399 A	11-09-1995
WO 9855228	A	10-12-1998	DE 19723949 A1	10-12-1998
			AU 8214098 A	21-12-1998
			CN 1266380 T	13-09-2000
			WO 9855228 A1	10-12-1998
			EP 0996501 A1	03-05-2000
			JP 2002504014 T	05-02-2002
			US 2002082159 A1	27-06-2002
			US 6380119 B1	30-04-2002
EP 0071137	A	09-02-1983	DE 3130065 A1	17-02-1983
			EP 0071137 A2	09-02-1983
			JP 58030340 A	22-02-1983
EP 0909804	A	21-04-1999	CN 1218786 A ,B	09-06-1999
			EP 0909804 A2	21-04-1999
			JP 11217341 A	10-08-1999
			NO 984818 A	16-04-1999
			US 6210562 B1	03-04-2001
US 4610972	A	09-09-1986	GB 2157967 A ,B	06-11-1985